



## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11) Publication number: **11139802 A**(43) Date of publication of application: **25 . 05 . 99**(51) Int. Cl. **C01B 3/38**  
**H01M 8/06**(21) Application number: **09319041**(22) Date of filing: **04 . 11 . 97**(71) Applicant: **AISIN SEIKI CO LTD JOHNSON**  
**MATTHEY PLC**(72) Inventor: **YOSHIYANAGI KOJI**(54) **REFORMER FOR FUEL CELL**

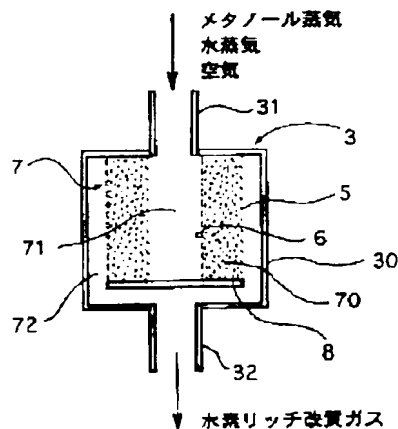
## (57) Abstract

**PROBLEM TO BE SOLVED:** To provide a reformer to enable effective utilization of a whole catalyst layer and sufficient shift reaction, to enhance a space velocity and to reduce a pressure drop.

**SOLUTION:** This reformer consists of a hollow cylindrical vessel 30 in which an opening part as an introduction port 31 for introducing the vapor of a methanol aq. solution employed as a raw fuel is formed in the central part of one axial end of the vessel 30 and another opening part as a delivery port 32 for delivering a reforming gas is formed in the central part of the other axial end of the vessel 30, a catalyst layer 7 composed of a hollow cylindrical body 70 which has a smaller outer diameter and a shorter length in the axial direction than the outer diameter and the length of the vessel 30 respectively and is placed within the vessel 30, also in which one axial end of the layer is stuck to the one axial end of the vessel 30, further, in which a plate 8 for closing a central opening of the other axial end of the layer is provided and using a partial oxidation reaction as the reforming reaction an internal space 71 formed in the inside of the hollow cylindrical catalyst layer and communicated with the introducing port 31 and an external space 72 which is formed in the outside of the hollow cylindrical catalyst layer 7 and communicated with the delivery port 32

wherein the cross-sectional area of the passage in the external space 72 is made so as to be larger than that in the internal space 71.

COPYRIGHT: (C)1999,JPO



(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平11-139802

(43) 公開日 平成11年(1999) 5月25日

(51) Int.Cl.<sup>6</sup>

識別記号

C 0 1 B 3/38

H 0 1 M 8/06

F I

C 0 1 B 3/38

H 0 1 M 8/06

G

審査請求 未請求 請求項の数10 F D (全 10 頁)

(21) 出願番号 特願平9-319041

(22) 出願日 平成9年(1997)11月4日

(71) 出願人 000000011

アイシン精機株式会社

愛知県刈谷市朝日町2丁目1番地

(71) 出願人 590004718

ジョンソン マッセイ パブリック リミ

テイド カンパニー

イギリス国, ロンドン エスタブリュ1

5 ビーキュー, トラファルガー スクエ

ア, コックスパー ストリート 2-4

(72) 発明者 吉柳 考二

愛知県刈谷市朝日町2丁目1番地 アイシ

ン精機株式会社内

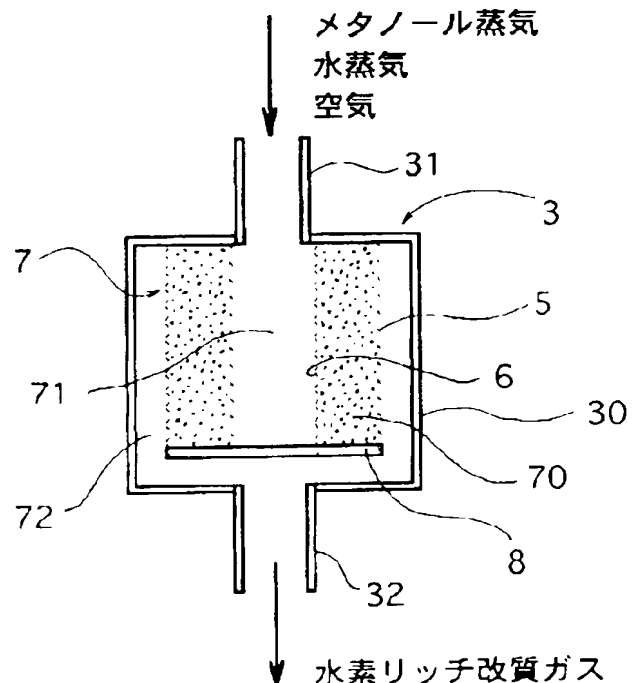
(74) 代理人 弁理士 ▲高▼橋 克彦

(54) 【発明の名称】 燃料電池用改質装置

(57) 【要約】

【課題】 触媒層全体を有効に利用し十分なレフト反応を可能にし、空間速度を高め、圧力損失を低減すること

【解決手段】 一方の軸端の中央部に原燃料としてのメタノール水溶液の蒸気を導入する導入口31としての開口部が形成され他方の軸端の中央部に改質ガスを送出する送出口32としての開口部が形成された中空円筒状の容器30と、前記容器より外径および軸方向の長さの小さな中空筒状体70によって構成され、一方の軸端が前記容器30の一方の軸端に固着され、他方の軸端の中央開口部を閉止するプレートが配設され改質反応として部分酸化反応を用いる触媒層7と、該中空筒状体の触媒層内部に形成され前記導入口に連絡する内部空間71と、前記中空筒状体の触媒層外部に形成され前記送出口に連絡する外部空間72とから成り、前記触媒層の前記外部空間側の通過断面積が前記内部空間側の通過断面積より大きくなるように構成されている燃料電池用改質装置。



## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 部分酸化反応を改質反応として用いた燃料電池用改質装置において、

原燃料としてメタノール水溶液の蒸気を導入する導入口と改質ガスを送出する送出口とを備えた容器と、該容器内を前記導入口に連絡する内部空間と前記送出口に連絡する外部空間とに区画するとともに、前記外部空間側の通過断面積が前記内部空間側の通過断面積より大きくなるように構成された触媒層とから成ることを特徴とする燃料電池用改質装置。

【請求項2】 請求項1において、前記触媒層の前記外部空間側の通過断面積が、前記内部空間側の通過断面積より20%ないし250%の範囲内で大きくなるように構成されていることを特徴とする燃料電池用改質装置。

【請求項3】 請求項1において、前記触媒層の前記通過断面積が、前記内部空間側から前記外部空間側に向かって徐々に増加するように構成されていることを特徴とする燃料電池用改質装置。

【請求項4】 請求項1において、前記触媒層が、メタノール改質触媒が担持されたアルミナのようなセラミックスその他のポーラス材によって構成されていることを特徴とする燃料電池用改質装置。

【請求項5】 請求項1において、前記触媒層が、同軸的に配置された小径の円筒状の金網と大径の円筒状の金網との間に粒状の触媒を配置することにより構成されていることを特徴とする燃料電池用改質装置。

【請求項6】 請求項1において、前記容器が、一方の軸端の中央部に開口部が形成され他方の軸端の中央部に開口部が形成された中空円筒状の容器によって構成され、前記触媒層が、前記容器より外径および軸方向の長さの小さな中空筒状体によって構成され、一方の軸端が前記導入口を構成する前記一方の開口部が形成された前記一方の軸端に固着され、他方の軸端の中央開口部を閉止するプレートが配設されていることを特徴とする燃料電池用改質装置。

【請求項7】 請求項1において、前記容器が、一方の軸端の周縁部に開口部が形成され他方の軸端の中央部に開口部が形成された中空円筒状の容器によって構成され、前記触媒層が、前記容器の内周壁に一定角度毎に外径の小さな中空筒状体の一部分を複数並設することにより構成され、前記容器の内周壁と前記各中空筒状体の一部分の内周壁との間に前記内部空間が形成され、前記各中空筒状体の一部分の外周壁との間に前記外部空間が形成されること\*

【数2】

\*を特徴とする燃料電池用改質装置。

【請求項8】 請求項1において、前記容器が、一方の軸端の中央部に開口部が形成され他方の軸端の中央部に開口部が形成された外径が徐々に増加する中空の截頭円錐台状の容器によって構成され、前記触媒層が、前記導入口を構成する前記開口部から一定距離離れた位置から前記送出口を構成する前記開口部から一定距離離れた位置までの間の前記截頭円錐台状の容器内に配設されていることを特徴とする燃料電池用改質装置。

【請求項9】 請求項1において、前記容器が、一方の軸端の中央部に開口部が形成され他方の軸端の中央部に開口部が形成された中空円筒状の容器によって構成され、前記触媒層が、前記容器の内部に配設され、内部に小径の球状の内部空間が形成された中空球状体によって構成され、

前記容器の一方の軸端の前記開口部に前記中空球状体の前記内部空間を連通させ、前記中空球状体の触媒層の外側壁と前記容器内周壁との間に外部空間が形成されることを特徴とする燃料電池用改質装置。

【請求項10】 請求項1において、前記容器内に前記原燃料として炭化水素が導入され改質されることを特徴とする燃料電池用改質装置。

## 【発明の詳細な説明】

【0001】

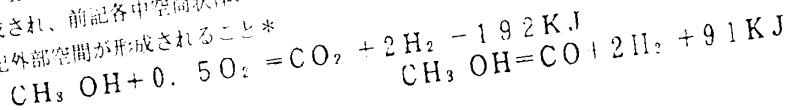
【発明の属する技術分野】 本発明は、部分酸化反応（オートサーマルと呼ばれることもある）を改質反応として用いた燃料電池用改質装置において、原燃料としてメタノール水溶液の蒸気を導入する導入口と改質ガスを送出する送出口とを備えた容器と、該容器内を前記導入口に連絡する内部空間と前記送出口に連絡する外部空間とに区画するとともに、前記外部空間側の通過断面積が前記内部空間側の通過断面積より大きくなるように構成された触媒層とから成る燃料電池用改質装置に関するものである。

【0002】

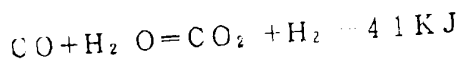
【従来の技術】 従来の燃料電池への水素供給装置として、改質器が多く採用されているが、その始動性、応答性向上および小型化のために、従来の水素発生装置（特開平8-231201）においては、部分酸化法といわれる改質反応が有効であると示されている。

【0003】 部分酸化反応による改質では、一般的に過剰水を加えた反応を用い、以下の部分酸化反応を示す数式1、メタノール分解反応を示す数式2、シフト反応を示す数式3に示されるような反応式が考えられている。

【数1】



【教3】



【0004】実務の改質器では、メタノールの部分酸化反応が起き、その発熱によりメタノール分解反応が進み、そのCOと過剰水からシフト反応は起る。この場合、部分酸化反応およびメタノール分解反応が比較的高温である300～400℃で進むのに対し、シフト反応では未反応CO濃度を下げるためには、例えば150～250℃といった比較的低温で進み、また反応速度もシフト反応は部分酸化反応やメタノール分解反応に比べ遅く、反応全体ではシフト反応が律速になる。

【0005】しかしながら、上記3種類の反応が進むにつれ、上式の右辺にある反応生成物のモル数は、左辺のモル数より増加する。つまり、生成ガスの容積は増加し、これにより流速も増加する。つまり、3番目のシフト反応が起こる領域では流速が高くなり、十分なシフト反応が行えなくなるといった問題がある。

【0006】部分酸化反応による改質器としては、外部からの熱供給が必要であり、例えば従来の水素発生装置（特開平8-231201）は、図10に示されるように改質器Kの内部に直接原燃料を吹き込む構造のものを提案している。

【0007】また、Argonne National Laboratory 社により、1992年8月に発表された「燃料電池におけるメタノールその他の燃料から水素を発生させるための改質装置」と題する論文（REFORMERS FOR THE PRODUCTION OF HYDROGEN FROM METHANOL AND ALTERNATIVE FUELS FOR FUEL CELL POWERED VEHICLE）には、図7に示されるようにthe JPL autothermal reformer という原燃料ガスと空気と水蒸気をスワールミキサーSMによって混合し、低温活性触媒層Iと酸化触媒層Oの水素気改質触媒層Hとが積層された円筒状改質器の軸方向に供給して、原燃料ガスを送り込み改質するというものであった。

【0008】

【発明が解決しようとする課題】上記従来の水素発生装置は、改質器内部の触媒層に均一に原燃料を送り込み、触媒層全体を有効に利用することが困難であり、十分なシフト反応を行うことが出来ないとともに、空間速度を高めることが困難であった。

【0009】上記従来の改質装置は、原燃料ガスが通過する円筒状改質器の通路が長くなるため、触媒性能の目安である触媒単位容積当たりの反応ガス流量を示す容積速度を上げようとすると、流速が高くなり圧力損失が大きくなるため、原燃料導入が高圧となり動力が多く必要になるという問題があった。

【0010】また、シフト反応を十分に行わせるためには、図11中の水素気改質を行う前記水素気改質触媒層の容積を大きくする必要があり、圧力損失増大および容

積速度の低下につながるという問題があった。

【0011】そこで本発明者は、部分酸化反応（オットーサーマルと呼ばれることもある）を改質反応として用いた燃料電池用改質装置において、容器内を触媒層によって原燃料としてのメタノール水溶液の蒸気を導入する導入口に連絡する内部空間と改質ガスを送出する送出口に連絡する外部空間とに区画するとともに、前記外部空間側の通過断面積が前記内部空間側の通過断面積より大きくなるようにするという本発明の技術的思想に着眼し、さらに研究開発を重ねた結果、前記触媒層全体を有効に利用し十分なシフト反応を可能にし、空間速度を高め、圧力損失を低減するという目的を達成する本発明に到達した。

【0012】

【課題を解決するための手段】本発明（請求項1に記載の第1発明）の燃料電池用改質装置は、部分酸化反応をの第1発明）の燃料電池用改質装置において、原改質反応として用いた燃料電池用改質装置において、原燃料としてメタノール水溶液の蒸気を導入する導入口と改質ガスを送出する送出口とを備えた容器と、該容器内を前記導入口に連絡する内部空間と前記送出口に連絡する外部空間とに区画するとともに、前記外部空間側の通過断面積が前記内部空間側の通過断面積より大きくなるように構成された触媒層とから成るものである。

【0013】本発明（請求項2に記載の第2発明）の燃料電池用改質装置は、前記第1発明において、前記触媒層の前記外部空間側の通過断面積が、前記内部空間側の通過断面積より20%ないし250%の範囲内で大きくなるように構成されているものである。

【0014】本発明（請求項3に記載の第3発明）の燃料電池用改質装置は、前記第1発明において、前記触媒層の前記通過断面積が、前記内部空間側から前記外部空間側に向かって徐々に増加するように構成されているものである。

【0015】本発明（請求項4に記載の第4発明）の燃料電池用改質装置は、前記第1発明において、前記触媒層が、メタノール改質触媒が担持されたアルミナのようなセラミックスその他のポーラス材によって構成されているものである。

【0016】本発明（請求項5に記載の第5発明）の燃料電池用改質装置は、前記第1発明において、前記触媒層が、同軸的に配置された小径の円筒状の金網と大径の円筒状の金網との間に触媒を配置することにより構成されているものである。

【0017】本発明（請求項6に記載の第6発明）の燃料電池用改質装置は、前記第1発明において、前記容器が、一方の軸端の中央部に開口部が形成され他方の軸端の中央部に開口部が形成された中空円筒状の容器によって構成され、前記触媒層が、前記容器より外径および軸方向の長さの小さな中空円筒状の容器によって構成され、一方の軸端が前記導入口を構成する前記一方の開口部が形成

された前記一方の軸端に固着され、他方の軸端の中央開口部を閉止するプレートが配設されているものである。

【0018】本発明（請求項7に記載の第7発明）の燃料電池用改質装置は、前記第1発明において、前記容器が、一方の軸端の周縁部に開口部が形成され他方の軸端の中央部に開口部が形成された中空円筒状の容器によって構成され、前記触媒層が、前記容器の内周壁に一定角度毎に外径の小さな中空筒状体の一部分を複数並設することにより構成され、前記容器の内周壁と前記各中空筒状体の一部分の内周壁との間に前記内部空間が形成され、前記各中空筒状体の一部分の外周壁との間に前記外部空間が形成されるものである。

【0019】本発明（請求項8に記載の第8発明）の燃料電池用改質装置は、前記第1発明において、前記容器が、一方の軸端の中央部に開口部が形成され他方の軸端の中央部に開口部が形成された外径が徐々に増加する中空の截頭円錐台状の容器によって構成され、前記触媒層が、前記導入口を構成する前記開口部から一定距離離れた位置から前記送出口を構成する前記開口部から、一定距離離れた位置までの間の前記截頭円錐台状の容器内に配設されているものである。

【0020】本発明（請求項9に記載の第9発明）の燃料電池用改質装置は、前記第1発明において、前記容器が、一方の軸端の中央部に開口部が形成され他方の軸端の中央部に開口部が形成された中空円筒状の容器によって構成され、前記触媒層が、前記容器の内部に配設され、内部に小径の球状の内部空間が形成された中空球状体によって構成され、前記容器の一方の軸端の前記開口部に前記中空球状体の前記内部空間を連通させ、前記中空球状体の触媒層の外側壁と前記容器内周壁との間に外部空間が形成されるものである。

【0021】本発明（請求項10に記載の第10発明）の燃料電池用改質装置は、前記第1発明において、前記容器内に前記原燃料として炭化水素が導入され改質されるものである。

#### 【0022】

【発明の作用および効果】上記構成より成る第1発明の燃料電池用改質装置は、前記導入により原燃料としてメタノール水溶液の蒸気が前記容器の前記内部空間内に導入され、該容器内を前記内部空間と前記外部空間とに区画するとともに、前記外部空間側の通過断面面積が前記内部空間側の通過断面面積より大きくなるように構成された前記触媒層によって、該メタノール水溶液の蒸気を改質反応として部分酸化反応を行わせ、改質ガスを送出口を介して前記容器外に送出するものである。前記触媒層全体を有効に利用し十分なシフト反応を可能にするという効果を奏する。

【0023】上記構成より成る第2発明の燃料電池用改質装置は、前記第1発明において、前記触媒層の前記外部空間側の通過断面面積が、前記内部空間側の通過断面面積

より20%ないし250%の範囲内で大きくならように構成されているので、改質反応におけるモル数の増加による改質ガスの体積流量が増加しても改質ガスの流速の増加を抑制して、圧力損失の増加を抑制することにより、圧力損失を低減するという効果を奏する。

【0024】上記構成より成る第3発明の燃料電池用改質装置は、前記第1発明において、前記触媒層の前記通過断面面積が、前記内部空間側から前記外部空間側に向かって徐々に増加するように構成されているので、改質反応におけるモル数の増加による改質ガスの体積流量が増加しても改質ガスの流速の増加を一様に抑制して、圧力損失の増加を抑制することにより圧力損失を低減するという効果を奏する。

【0025】上記構成より成る第4発明の燃料電池用改質装置は、前記第1発明において、前記触媒層が、メタノール改質触媒が担持されたアルミナのようなセラミックスその他のポーラス材によって構成されているので、ポーラス材に担持されたメタノール改質触媒によって、通過するメタノール水溶液の蒸気を一様に改質するという効果を奏する。

【0026】上記構成より成る第5発明の燃料電池用改質装置は、前記第1発明において、前記触媒層が、同軸的に配置された小径の円筒状の金網と大径の円筒状の金網との間に粒状の触媒を配置することにより構成されているので、粒状の触媒によって通過するメタノール水溶液の蒸気を一様に改質するという効果を奏する。

【0027】上記構成より成る第6発明の燃料電池用改質装置は、前記第1発明において、中空円筒状の前記容器の一方の軸端の中央部に形成された前記開口部によって、前記容器の一方の軸端に固着された外径および軸方向の長さの小さな中空筒状体の前記触媒層の内部に形成された前記内部空間内に原燃料としてメタノール水溶液の蒸気が導入され、中空筒状体の前記触媒層によって該メタノール水溶液の蒸気を改質反応としての部分酸化反応を行わせ、改質ガスを中空筒状体の前記触媒層の外周側および該触媒層の他方の軸端の中央開口部に配設され閉止するプレートの外側の外部空間から前記容器の他方の軸端の中央部に形成された前記開口部から排出されるので、前記触媒層全体を有効に利用し十分なシフト反応を可能にするとともに、空間速度を高め、圧力損失を低減するという効果を奏する。

【0028】上記構成より成る第7発明の燃料電池用改質装置は、前記第1発明において、前記中空円筒状の容器の一方の軸端の周縁部に形成された開口部から、前記容器の内周壁に一定角度毎に複数並設された外径の小さな中空筒状体部分によって構成された前記触媒層と前記容器の内周壁との間に形成された前記内部空間内に原燃料としてメタノール水溶液の蒸気が導入され、前記容器の内周壁に一定角度毎に複数並設された外径の小さな中空筒状体部分によって構成された前記触媒層によって導

10

20

30

40

50

入されたメタノール水溶液の蒸気を改質反応としての部分酸化反応を行わせ、改質ガスを各触媒層の外周壁との間に形成された前記外部空間から前記容器の他方の軸端の中央部に形成された前記開口部から排出されるので、前記触媒層全体を有効に利用し十分なシフト反応を可能にするとともに、空間速度を高め、圧力損失を低減するという効果を奏する。

【0029】上記構成より成る第8発明の燃料電池用改質装置は、前記第1発明において、外径が徐々に増加する中空の截頭円錐台状の前記容器の一方の軸端の中央部に形成された前記開口部から、該開口部から一定距離離れた位置に配設された前記触媒層との間に形成された前記内部空間内に原燃料としてメタノール水溶液の蒸気が導入され、截頭円錐台状の触媒層によって導入されたメタノール水溶液の蒸気を改質反応としての部分酸化反応を行わせ、改質ガスを前記触媒層と前記容器の他方の軸端との間に形成された外部空間から前記容器の他方の軸端の中央部に形成された前記開口部から排出されるので、前記触媒層全体を有効に利用し十分なシフト反応を可能にするとともに、空間速度を高め、圧力損失を低減するという効果を奏する。

【0030】上記構成より成る第9発明の燃料電池用改質装置は、前記第1発明において、前記中空円筒状の容器の一方の軸端の中央部に形成された開口部から、中空球状体の前記触媒層の内部に形成された小径の球状の前記内部空間内に原燃料としてメタノール水溶液の蒸気が導入され、前記中空球状体の触媒層によって導入されたメタノール水溶液の蒸気を改質反応としての部分酸化反応を行わせ、改質ガスを前記触媒層と前記容器の内周壁との間に形成された外部空間から前記容器の他方の軸端の中央部に形成された前記開口部から排出されるので、前記触媒層全体を有効に利用し十分なシフト反応を可能にするとともに、空間速度を高め、圧力損失を低減するという効果を奏する。

【0031】上記構成より成る第10発明の燃料電池用改質装置は、前記第1発明において、前記容器内に前記原燃料として炭化水素が導入され、前記触媒層によって改質されるので、改質反応におけるゼリ数の増加による改質ガスの体積産量が増加しても改質ガスの流速の増加を一樣に抑制して、圧力損失の増加を抑制することにより圧力損失を低減するといふ効果を奏する。

【0032】

【発明の実施の形態】以下本発明の実施の形態につき、図面を用いて説明する。

【0033】（第1実施形態）本第1実施形態の燃料電池用改質装置は、図1ないし図3に示されるように一方の軸端の中央部に原燃料としてのメタノール水溶液の蒸気を導入する導入131としての開口部が形成され他方の軸端の中央部に改質ガスを送出する送出口32としての開口部が形成された中空円筒状の容器30と、前記容

器より外径および軸方向の長さの小さな中空筒状体70によって構成され、一方の軸端が前記容器30の一方の軸端に固着され、他方の軸端の中央開口部を閉止するプレート8が配設され改質反応としての部分酸化反応を用いる触媒層7と、該中空筒状体の触媒層内部に形成され前記導入入口に連絡する内部空間71と、前記中空筒状体の触媒層外部に形成され前記送出口に連絡する外部空間72とから成り、前記触媒層の両記外部空間側の通過断面面積が前記内部空間側の通過断面面積より大きくなるように構成されているものである。

【0034】本第1実施形態の燃料電池用改質装置は、図2に示されるように原燃料としてのメタノール水溶液を貯留するメタノール水溶液タンク1と、メタノール水溶液タンク1から供給されるメタノール水溶液を気化する気化器2と、該気化器2から供給されるメタノール蒸気および水蒸気に空気を混合して、改質器3に供給する送風機4を備えている。

【0035】前記中空円筒状の容器30は、図1に示されるように一方の軸端の中央部に開口部が形成され原燃料としてのメタノール水溶液の蒸気を導入する導入口31を構成する小径のパイプが同軸的に配設され、他方の軸端の中央部に開口部が形成され改質ガスを送出する送出口32を構成する小径のパイプが同軸的に配設されている。

【0036】前記触媒層7が、図1に示されるように小径の円筒状の金網と大径の円筒状の金網とが同軸的に配置され、その間に粒状の触媒を配置することにより中空筒状体70が構成され、改質反応としての部分酸化反応を行うものである。

【0037】前記触媒層7は、前記容器30より外径および軸方向の長さの小さな前記中空筒状体70によって構成され、一方の軸端が前記容器の一方の軸端に固着され、他方の軸端の中央開口部を閉止するプレート8が配設されている。

【0038】前記触媒層7は、図3に示されるようにその前記外部空間側の通過断面面積Bが、前記内部空間側の通過断面面積Aより20%ないし250%の範囲内で大きくなるように設定されている。

【0039】前記触媒層7は、前記中空筒状体70によって構成されているので、図3に示されるように該触媒層7の前記通過断面面積が、前記内部空間側から前記外部空間側に向かって徐々に増加するように構成されている。

【0040】上記構成より成る第1実施形態の燃料電池用改質装置は、メタノール水溶液の蒸気が前記メタノール水溶液タンク1から前記気化器2へ導かれ、気化されたメタノール蒸気および水蒸気として前記改質器3に送り込まれる。

【0041】そのとき前記送風機1で改質反応のための空気が気化器2からの気化された前記メタノール蒸気お

よび水蒸気に混合される。その後、供給された前記メタノール蒸気、水蒸気および空気は、前記改質器3で改質され、前記送出口32から水素リッチなガスとして送り出される。

【0042】前記改質器3の内部において、原燃料であるメタノール蒸気、水蒸気および空気は、前記原燃料導入口31から前記容器30内に配置された前記金属メッシュでできた前記触媒保持網6の内部空間に充填された粒状の触媒層7へと導入される。

【0043】次に前記触媒保持網6を通過し触媒層7へ導入された原燃料であるメタノール蒸気、水蒸気および空気は、改質反応が開始される。その後、触媒層7で改質された原燃料は改質ガスとして触媒保持網6を通過し、前記外部空間72を介して前記改質ガス送出口32から送出される。

【0044】上記改質過程において、図3において前記触媒保持網6での入口面積Aを通過した原燃料は断面面積が徐々に拡大する前記触媒層7を通過しながら、改質されていく。

【0045】一般に改質反応では、モル数の比較では原料物質のモル数合計より生成物質のモル数合計の方が多いため、気体状態では生成物質の方が体積流量が多くなる。

【0046】つまり、従来装置のように前記触媒層の通過断面面積が一定であれば、流速が早くなり、圧力損失が増加する。特に、反応が比較的遅いソフト反応の部分では、流速が早くなると、十分な反応を行わせるために、触媒層の通過方向の厚さを増す必要があり、これにより圧力損失がさらに大きくなり、原燃料を導入するための動力がより必要となり、全体の効率低下という問題が生じる。

【0047】しかし、本第1実施形態においては、図3に示されるように前記触媒層7の通過断面面積は徐々に大きくなっていくため、流速の増加が抑えられ、圧力損失の増加が抑制される。

【0048】このようにして、前記触媒層7における改質反応を終えた改質ガスとして、触媒保持網5を通過し、前記外部空間72を介して前記ガス送出口32から送出される。

【0049】上記作用を奏する第1実施形態の燃料電池用改質装置は、前記外部空間側の通過断面面積が前記内部空間側の通過断面面積より大きくなるように構成された前記触媒層7によって、原燃料としての前記メタノール水溶液の蒸気を改質反応として部分酸化反応及び水蒸気反応を行わせ、改質ガスを前記送出口32を介して前記容器30外に送出するものであるため、前記触媒層7全体を有効に利用し十分な反応を可能にするという効果を奏する。

【0050】また第1実施形態の燃料電池用改質装置は、前記触媒層7の前記外部空間側の通過断面面積が、前

記内部空間側の通過断面面積より前記20%ないし250%の範囲内で大きくなるように設定されているので、改質反応におけるモル数の増加による改質ガスの体積流量が増加しても改質ガスの流速の増加を抑制して、圧力損失の増加を抑制することにより圧力損失を低減するという効果を奏する。

【0051】さらに第1実施形態の燃料電池用改質装置は、前記触媒層7を中空円筒体として、前記触媒層の前記通過断面面積が、前記内部空間71側から前記外部空間72側に向かって徐々に増加するように構成されているので、改質反応におけるモル数の増加による改質ガスの体積流量が増加しても改質ガスの流速の増加を一様に抑制して、圧力損失の増加を抑制することにより圧力損失を低減するという効果を奏する。

【0052】また第1実施形態の燃料電池用改質装置は、前記触媒層7が、同軸的に配置された小径の円筒状の金網6と大径の円筒状の金網5との間に粒状の触媒を配置することにより構成されているので、粒状の触媒によって通過するメタノール水溶液の蒸気を一様に改質するという効果を奏する。

【0053】さらに第1実施形態の燃料電池用改質装置は、前記中空筒状体70の前記触媒層7によって該メタノール水溶液の蒸気を改質反応としての部分酸化反応及び水蒸気改質反応を行わせ、改質ガスを前記触媒層7の外周側および該触媒層7の他方の軸端の中央開口部に配設され閉止する前記プレート8の外側の前記外部空間72から前記容器30の他方の軸端の中央部に形成された前記送出口32から排出されるので、前記触媒層7全体を有効に利用し十分なソフト反応を可能にするとともに、空間速度を高め、圧力損失を低減するという効果を奏する。

【0054】（第2実施形態）本第2実施形態の燃料電池用改質装置は、図4および図5に示されるように容器30内に複数に分割された触媒層73を配置して、前記容器30と該複数の触媒層73との間に内部空間71が形成され、前記複数の触媒層73の外側に外部空間72が形成される点が前記第1実施形態との相違点である。

【0055】本第2実施形態の燃料電池用改質装置は、前記容器30が、一方の軸端の周縁部に複数の導入口31が形成され他方の軸端の中央部に送出口32が形成された中空円筒状体によって構成され、前記触媒層が前記容器30の内周壁に一定角度毎に外径の小さな中空筒状体の部分73を複数並設することにより構成されている。

【0056】前記各触媒層73を構成する中空筒状体の部分は、小径の円筒状の金網62と大径の円筒状の金網53とが同軸的に配置され、その間に粒状の触媒を配置することにより中空筒状体が構成され、改質反応として部分酸化反応及び水蒸気改質反応を行うように構成されている。

【0057】上記構成より成る第2実施形態の燃料電池用改質装置は、前記中空円筒状の容器30の一方の軸端の周縁部に形成された複数の導入口31から、前記容器30の内周壁に一定角度毎に複数並設された外径の小さな中空筒状体部分によって構成された複数の前記触媒層73と前記容器の内周壁との間に形成された前記内部空間71内に原燃料としてメタノール水溶液の蒸気および空気が導入される。

【0058】前記容器30の内周壁に一定角度毎に複数並設された外径の小さな中空筒状体部分によって構成された前記触媒層73によって導入されたメタノール水溶液の蒸気および空気を改質反応としての部分酸化反応を行わせる。

【0059】得られた改質ガスが、各触媒層73の外周壁との間に形成された前記外部空間72から前記容器30の他方の軸端の中央部に形成された前記送出口32から排出される。

【0060】上記作用を奏する第2実施形態の燃料電池用改質装置は、前記容器30の内周壁に一定角度毎に複数並設された外径の小さな中空筒状体部分によって構成された前記触媒層73によって導入されたメタノール水溶液の蒸気および空気を改質反応としての部分酸化反応を行わせるので、入口側の通過断面積より出口側の通過断面積が徐々に大きくなっており反応でモル数が増え体積流量が増加しても前記触媒層73全体を有効に利用し十分なレフト反応を可能にするとともに、空間速度を高め、圧力損失を低減するという効果を奏する。

【0061】（第3実施形態）本第3実施形態の燃料電池用改質装置は、図6および図7に示されるように中空の截頭円錐台状の容器33の中央部に触媒層74を配設して、上下に空間を形成する点が前記第1実施形態との相違点である。

【0062】前記容器33が、一方の軸端の中央部に導入口31が形成され他方の軸端の中央部に送出口32が形成された外径が徐々に増加する中空の截頭円錐台状の容器によって構成されている。

【0063】前記触媒層74が、前記導入口31を構成する前記開口部から一定距離離れた位置から前記送出口32を構成する前記開口部から一定距離離れた位置にそれぞれ触媒保持網としての円形の金網を配置してその間の前記截頭円錐台状の容器33内に粒状の触媒が介挿されている。

【0064】前記截頭円錐台状の容器33の前記導入口31側の一方の軸端から前記截頭円錐台状の触媒層74の上端までに第1の空間75が形成され、前記送出口32側の他方の軸端から前記截頭円錐台状の触媒層74の上端までに第2の空間76が形成されている。

【0065】上記構成より成る第3実施形態の燃料電池用改質装置は、外径が徐々に増加する中空の截頭円錐台状の前記容器33の一方の軸端の中央部に形成された前

記導入口31から、該導入口31から一定距離離れた位置に配設された前記触媒層74の上端との間に形成された前記内部空間75内に原燃料としてメタノール水溶液の蒸気および空気が導入される。

【0066】前記截頭円錐台状の触媒層74によって導入されたメタノール水溶液の蒸気および空気を改質反応としての部分酸化反応を行わせ、改質ガスを前記触媒層74と前記容器33の他方の軸端との間に形成された前記外部空間76から前記容器の他方の軸端の中央部に形成された前記送出口32から排出される。

【0067】上記作用を奏する第3実施形態の燃料電池用改質装置は、通過面積が徐々に増加する前記截頭円錐台状の触媒層74によって、導入されたメタノール水溶液の蒸気および空気を改質反応としての部分酸化反応を行わせるので、前記触媒層全体を有効に利用し十分な、レフト反応を可能にするとともに、空間速度を高め、圧力損失を低減するという効果を奏する。

【0068】上記作用を奏する第3実施形態の燃料電池用改質装置は、中空の截頭円錐台状の容器33の中央部に触媒層74を配設して、上下に空間部75、76を形成する簡単な構成より成るので、コストを上げ、保守を容易にするという効果を奏する。

【0069】（第4実施形態）本第4実施形態の燃料電池用改質装置は、図8および図9に示されるように中空円筒体の容器30の中央部に球状の触媒層77を配設して、球状の触媒層77内外に内外の空間部78、79を形成する点が前記第1実施形態との相違点である。

【0070】前記容器30は、一方の軸端の中央部に開口部および導入口31が形成され、他方の軸端の中央部に開口部および送出口32が形成された中空円筒状の容器によって構成されている。

【0071】前記触媒層77が、前記容器30の内部に配設され、内部に小径の球状の内部空間78が形成された中空球状体の触媒層によって構成されている。

【0072】前記容器30の一方の軸端の前記開口部に前記中空球状体の前記触媒層77の前記内部空間78を連通させ、前記中空球状体の触媒層77の外側壁と前記容器30の内周壁との間に外部空間79が形成される。

【0073】前記触媒層77は、メタノール改質触媒が担持されたアルミナのようなセラミックスその他のポーラス材によって構成されている。

【0074】上記構成より成る第4実施形態の燃料電池用改質装置は、前記中空円筒状の容器30の一方の軸端の中央部に配設された前記導入口31から、中空球状体の前記触媒層77の内部に形成された小径の球状の前記内部空間78内に原燃料としてメタノール水溶液の蒸気および空気が導入される。

【0075】前記中空球状体の触媒層77によって、導入されたメタノール水溶液の蒸気および空気を改質反応としての部分酸化反応を行わせ、改質ガスを前記触媒層

10

20

30

40

50



77と前記容器30の内周壁との間に形成された前記外部空間79から前記容器30の他方の軸端の中央部に形成された前記送出口32から排出される。

【0076】上記作用を奏する第1実施形態の燃料電池用改質装置は、前記中空筒状体の触媒層77によって、導入されたメタノール水溶液の蒸気および空気を改質反応としての部分酸化反応を行わせるので、前記触媒層全体を有効に利用し得る、すなわち反応を可能にするとともに、空間効率を高め、圧力損失を低減するという効果を奏する。

【0077】すなわち通過面積が内外側から内外周側へ3次元的に増加する前記中空筒状体の触媒層77によって部分酸化反応を行わせるので、流速の増加が抑えられ、圧力損失の増加が抑制される。

【0078】したがって従来装置のように前記触媒層の通過断面積が一定であれば、流速が早くなり、圧力損失が増加する。特に従来装置における反応が比較的遅い、プロ反応の部分では、流速が早くなると、十分な反応を行わせるために、触媒層の通過方向の厚さを増す必要があり、これにより圧力損失がさらに大きくなり、原燃料を導入するための動力がより必要となり、全体の効率低下という問題が回避される。

【0079】また第1実施形態の燃料電池用改質装置は、前記複数の触媒層77をメタノール改質触媒が担持されたアルミナのようなセラミックスその他のポーラス材によって構成されているので、ポーラス材に担持されたメタノール改質触媒によって、通過するメタノール水溶液の蒸気を一様に改質するという効果を奏するとともに、部品点数を減らして構成をシンプルにするという効果を奏する。

【0080】上述の実施形態は、説明のために例示したもので、本発明としてはそれらに限定されるものではなく、特許請求の範囲、発明の詳細な説明および図面の記載から当業者が認識することができる本発明の技術的思想に反しない限り、変更および付加が可能である。

【0081】上述の第1実施形態ないし第3実施形態においては、一例として金網の間に粒状の触媒を介挿して触媒層を形成する例について説明したが、本発明として\*

\*はそれらに限定されるものではなく、触媒が担持されたポーラス材によって触媒層を構成する態様も採用することが出来る。

【0082】上述の第4実施形態においては、一例として触媒が担持されたポーラス材によって触媒層を構成する例について説明したが、本発明としてはそれらに限定されるものではなく、金網の金網の間に粒状の触媒を介挿して触媒層を形成する態様も採用することが出来る。

#### 【図面の簡単な説明】

10 【図1】 本発明の第1実施形態における燃料電池用改質装置を示す断面図である。

【図2】 本第1実施形態装置の全体を示すブロック図である。

【図3】 本第1実施形態における触媒層を示す部分拡大断面図である。

【図4】 本発明の第2実施形態における燃料電池用改質装置を示す断面図である。

【図5】 本第2実施形態装置の容器の横断面を示す断面図である。

20 【図6】 本発明の第3実施形態における燃料電池用改質装置を示す断面図である。

【図7】 本第3実施形態装置の容器を示す平面図である。

【図8】 本発明の第4実施形態における燃料電池用改質装置を示す断面図である。

【図9】 本第1実施形態装置の容器を示す平面図である。

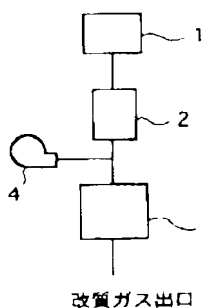
【図10】 従来の水素発生装置を示す断面図である。

【図11】 従来の改質装置を示す断面図である。

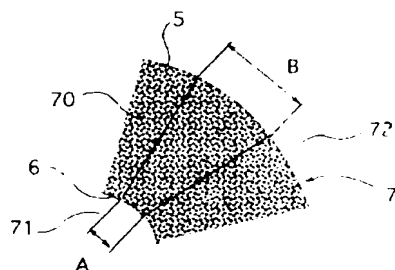
#### 【符号の説明】

- 31 導入口
- 32 送出口
- 30 容器
- 70 中空筒状体
- 6 プレート
- 7 触媒層
- 71 内部空間
- 72 外部空間

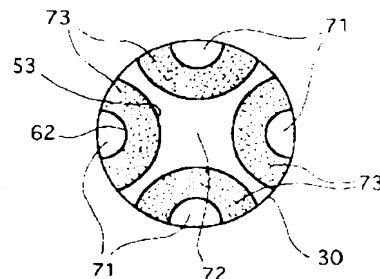
【図2】



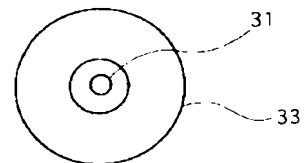
【図3】



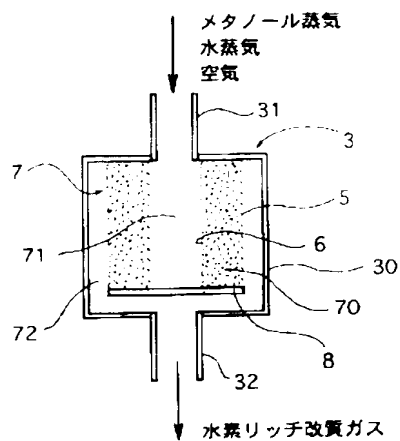
【図5】



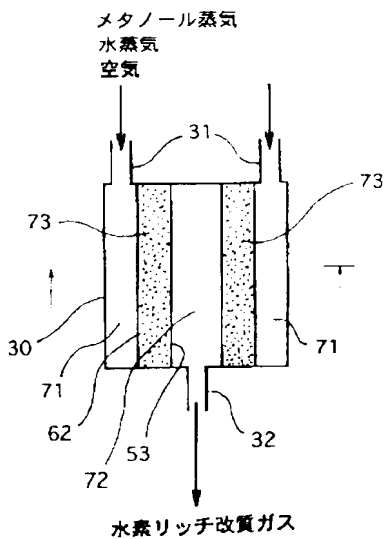
【図7】



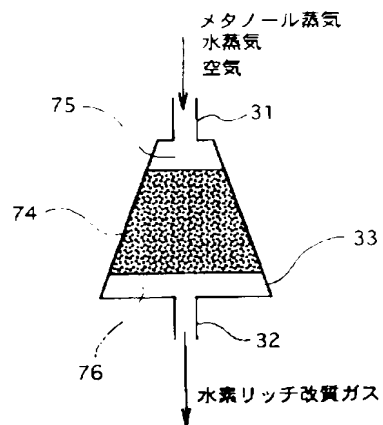
【図1】



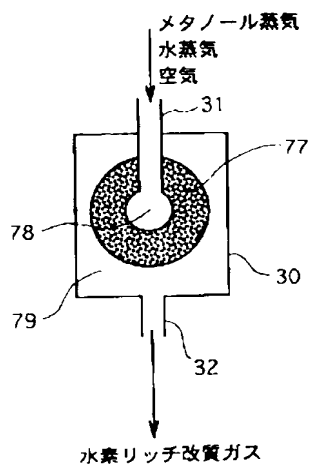
【図4】



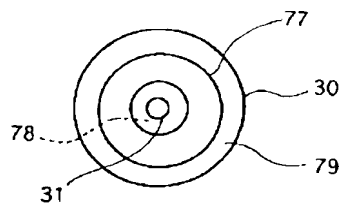
【図6】



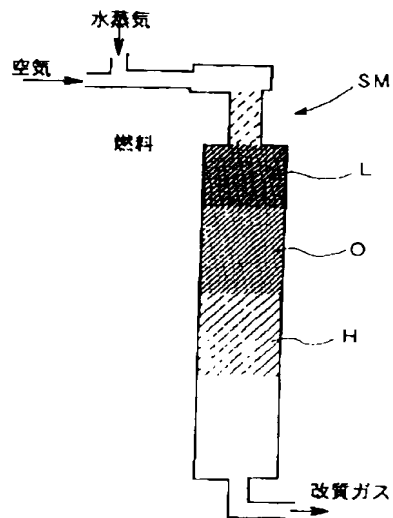
【図8】



【図9】



【図11】



【図10】

